

AGRICULTURAL AND HORTICULTURAL MICROBICIDE

Publication number: JP54117029 (A)

Publication date: 1979-09-11

Inventor(s): NISHIMURA TAMIO; MIYAMOTO YOSHIKO; OYAMA HIROSHI; YAMAMURA HIROSHI; MORITA TAKESHI; MATSUMOTO KUNIOMI; WATANABE TETSUO

Applicant(s): HOKKO CHEM IND CO; MEIJI SEIKA CO

Classification:

- international: A01N43/56; C07D403/04; C07D403/14; A01N43/48; C07D403/09; (IPC1-7): A01N8/22; C07D403/04

- European:

Application number: JP19780023414 19780228

Priority number(s): JP19780023414 19780228

Also published as:

JP56018564 (B)

JP1076238 (C)

Abstract of JP 54117029 (A)

PURPOSE: An agricultural and horticultural microbicide non-phyto-toxic to plants, low-toxic to man, beast and fish, and effective to rice blast, helminthosporum leaf spot, powdery mildew of cucumber, etc., containing a pyrazolopyrimidine derivative as an effective component. CONSTITUTION: The title microbicide containing a pyrazolopyrimidine derivative of the formula (R1 is methyl, phenyl, R2 is H; R1 and R2 may together form a carbon ring, R3 is Cl, SH, phenoxy, 4-chlorophenoxy, phenyl, lower alkylamino, 3,5-dimethyl-1-pyrazolyl, hydrazino, e.g. 2-(3,5-dimethyl-1-pyrazolyl)-5-methyl-4-phenoxy pyrimidine. It can be applied to the leaf and stalk, the surface of paddy rice field, the surface of soil or in the soil, when applied in a liquid form, it is pref. diluted to an effective concentration of 1.0-1000 ppm.

Data supplied from the **espacenet** database — Worldwide

⑪公開特許公報(A)

昭54-117029

⑫Int. Cl. ²	識別記号	⑬日本分類	序内整理番号	⑭公開	昭和54年(1979)9月11日
A 01 N 9/22		30 F 371.222	7142-4H		
C 07 D 403/04 //		16 E 461	6670-4C	発明の数	1
(C 07 D 403/04		30 F 91		審査請求	未請求
C 07 D 233/00			7306-4C		
C 07 D 239/00)			6670-4C		(全 6 頁)

⑮農園芸用殺菌剤

9

⑯特 願 昭53-23414

⑭發明者 山村宏志

⑰出 願 昭53(1978)2月28日

秦野市下大槻410番地 下大槻

⑱發明者 西村民男

団地2-10-304

東京都板橋区氷川町23の1の40

森田健

1

厚木市戸田2385番地

同 宮本美子

北興化学工業株式会社

川崎市高津区鷺沼1の22の3

東京都中央区日本橋本石町4丁

鷺沼ヒルズ106

目2番地

同 大山廣志

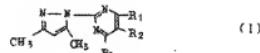
⑲代理人 弁理士 山下白

茅ヶ崎市堤348番地 B-22-1

最終頁に続く

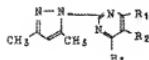
明細書

1.発明の名前 農園芸用殺菌剤



2.特許請求の範囲

一般式



(ただし式中 R₁はメチル基またはフェニル基を示し、R₂は水素原子であるあるいはR₁と共に炭素環状基を形成してもよく、R₃は塩素原子、Br基、O- \bigcirc 基、O- \bigcirc -C₆H₄基、S- \bigcirc 基、低級アルキルアミノ基、—NH₂基またはNHNH₂基を示す)で表わされるピラゾリルピリミジン誘導体を有効成分としてなる農園芸用殺菌剤に特徴とする農園芸用殺菌剤。

3.発明の詳細な説明

本発明は、一般式(I)

(ただし式中 R₁はメチル基またはフェニル基を示し、R₂は水素原子であるあるいはR₁と共に炭素環状基を形成してもよく、R₃は塩素原子、Br基、O- \bigcirc 基、O- \bigcirc -C₆H₄基、S- \bigcirc 基、低級アルキルアミノ基、—NH₂基またはNHNH₂基を示す)で表わされるピラゾリルピリミジン誘導体を有効成分としてなる農園芸用殺菌剤に特徴する。

前記一般式(I)で表わされる化合物は武田研究所年報第22巻第27-46頁(昭和37年)、特公昭59-4491号公報および特公昭59-4493号公報において、抗結核作用、抗生素作用、抗瘧疾作用などを有するものであることが既知である。またこれらに類似する化合物としては2-(5,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-4-メチル-6-ヒドロキシピリミジン-2-(5,5-

ジメチル-1-ピラゾリル]-4-フェニル-6-ヒドロキシピリミジンおよび2-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-4-メチル-6-ナオシアノピリミジンが武田研究所年報第24巻第250~258頁(1965)において福のいもち病に防除活性を有する反面福等の有用植物に對して廉しい薬害を与えるものであることが知られている。

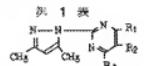
本発明者は一連のピラゾリルピリミジン系化合物を多數合成して農園用殺菌剤としての実用性について検討した。その結果、前記一般式(I)で表わされる特定の化合物群が、福のいもち病、福のこま葉枯病、キュウリのうどんこ病などに對して極めて顯著な防除活性を有することを見出した。これら一連の化合物は有用植物には全く薬害を与えることなく、また人畜毒性や魚毒性もなく安全に使用できるので極めて優れた殺菌剤である。

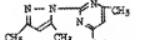
本発明のこのような特徴は前掲技術文献に記載された技術レベルからは當業者といえども推

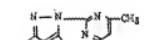
考しがたいものであり、本発明に係る農園用殺菌剤は实用性が大いに期待される優れた殺菌剤である。

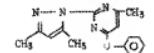
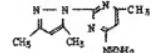
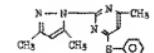
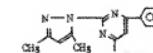
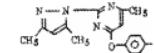
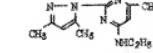
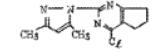
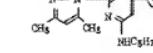
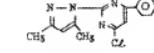
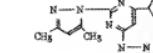
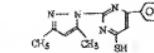
前記一般式(I)の化合物は前掲技術文献に記載の方法に準じて製造した。以下にその方法により製造された化合物を示す。

なお化合物番号は以下の実験例および試験例においても参照される。



化合物番号	化字構造式	物理値 融点(℃)
1		m.p. 57~58

2		m.p. 177~180
---	---	--------------

3		m.p. 105.5~106	9		m.p. 185~184
4		m.p. 56~57	10		m.p. 206~207
5		m.p. 149~150	11		m.p. 99~100
6		m.p. 131~133	12		m.p. 152~154.5
7		m.p. 117~118	13		m.p. 155~155.5
8		m.p. 174~175			

本発明の農園用殺菌剤を農加作物の病害防治に使用するには、本発明の化合物をそのま

まかかるいは水、固体粉末その他の適当な担体を用いて被覆し必要に応じて接着剤等の補助剤を加えて使用するか、または農業製造に一般的に行われている方法により各種の液体あるいは固体担体と混合し、必要ならば接着剤、防腐剤、分散剤、乳化剤、固着剤等の補助剤を加え、水和剤、液剤、乳剤、油剤、粒剤、粉剤等の種々の製剤形態にして使用することができる。

これらの製剤を製造するに當つては、液体担体としては例えば水、芳香族炭化水素類、脂肪族炭化水素類、アルコール類、エスチル類、ケトン類、揮発性の大きさジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等の溶剤、固体担体としてはクレー、タルク、カオリン、ペントナイト、磁鐵土、炭酸カルシウム、硫酸等の無機質粉末類、木粉その他の有機質粉末類を用いることができ、補助剤としてはヰイオン、脂イオン、陽

イオンまたは両性界面活性剤、リグニンヌクルン酸あるいはその塩、ガム類、脂肪酸塩類、メチセルロース等の粘剤が挙げられる。

更に必要ならば、他の殺菌剤、殺虫剤、除草剤、植物生長調節剤、殺駆虫剤等の殺蟲または肥料剤を混合して用いることもできる。

本発明の農園芸用殺菌剤は病害防除が望まれる作物に直接散布して用いることができるほか、必要に応じて水面や土壤表面等の作物の生育環境に撒用することもでき、土壤中に混和して使用することもできる。本発明の農園芸用殺菌剤を液剤として使用する場合には、通常散布量中に本発明の化合物が1.0~1,000 p.p.m.の濃度で含まれるようにするのが望ましく、漁業小量散布、航空機散布等の場合には必要に応じてより濃厚な散布液として使用することができ、粉剤、粒剤、液剤等として用いる場合には0.3~50%

含まるようにしてすることが望ましい。

次に本発明の農園芸用殺菌剤の実施例を示すが、本発明はこれに限定されるものではない。

実施例1 水和剤

化合物番号1 0の化合物2 0重量部とボリオキシエテレンアルキルアリールエーテル5重量部、リグニンスルホン酸カルシウム3重量部および硅藻土7 2重量部を均一に粉砕混合すれば有効成分2 0%を含む水和剤を得る。

実施例2 粒剤

化合物番号1 1の化合物5重量部とリグニンスルホン酸カルシウム1重量部、ペントナイト3 0重量部およびクレー6 4重量部を均一に粉砕混合し、次に適当量の水を加えて複合した後液剤して乾燥すれば、有効成分5%を含む粒剤を得る。

実施例3 粉剤

化合物番号6の化合物3重量部と無水硫酸雲母粉0.5重量部、ステアリン酸カルシウム0.5重量部、クレー5 0重量部およびタルク4 6重量部を均一に粉砕混合すれば有効成分5%を含む粉剤を得る。

実施例4 乳剤

化合物番号2の化合物2 0重量部とジメチルホルムアミド0.5重量部、キシレン3 5重量部およびボリオキシエテレンアルキルアリールエーテル1 5重量部を均一に溶解混合すれば、有効成分2 0%を含む乳剤を得る。

試験例1 水稲のいもち病防除効果試験(予防)
温室内で直径9 cmの苗鉢で土耕栽培した水稻(品種 地日)の第3葉期苗に所定濃度に希釈した供試溶液を散布した。散布せた1日後にいもち病菌の孢子懸濁液を噴霧播種した。播種後一夜温室内条件下(温度9.5~10.0度湿度24~25°C)

に保つた。接種 5 日後には第 5 表の 1 集あたりの病斑数を調査し、次式により防除率を算出した。

また群に対する乗率を次記の指標により調査した。結果は第 2 表のとおりである。

$$\text{防除率} (\%) = \left(1 - \frac{\text{散布区の病斑数}}{\text{無散布区の病斑数}} \right) \times 100$$

乗率の病斑指標

- 5 : 傷落
- 4 : 基
- 3 : 多
- 2 : 若干
- 1 : わずか
- 0 : なし

第 2 表

化合物番号	散布濃度 (ppm)	防除率	乗率指標
1	200	100	0
2	#	100	0
3	#	100	0
4	#	100	0
5	#	96	0

6	#	100	0
7	#	100	0
8	#	96	0
9	#	97	0
10	#	100	0
11	#	100	0
12	#	100	0
13	#	100	0

比較薬剤 1	#	75	5
# 2	#	76	5
# 5	#	74	5
# 4	480	76	0

無処理区	-	0	-
------	---	---	---

表中比較薬剤 1 は 2-(3,5-ジメチルピラゾリル)-4-メチル-6-ヒドロキシピリミジンを、比較薬剤 2 は 2-(3,5-ジメチルピラゾリル)-4-フェニル-6-ヒドロキシピリミジンを、そして比較薬剤 3 は 2-(3,5-ジメチル-1-ピラゾリル)-4-メチル-6-

-チオシアノピリミジンをそれぞれ含有するものであり、また比較薬剤 4 は 2,6-ジイソプロピル-8-ベンジルホスホロチオアートを含有する市販の殺菌剤（商品名ヤタジン）である。

試験例 2 水稻のいもち病防除効果試験（治療）

圃場内に直径 9 cm の穴鉢鉢で土耕後接した水稻（播種 15 日）の第 3 病期苗にいもち病の胞子懸液を噴霧接種した。接種後一夜温室条件下（温度 25~100 度、湿度 24~25%）に保つた。接種 1 日後には所定濃度に希釈した供試液を散布した。散布 5 日後に試験例 1 と同様に防除率および乗率を測定した。なお比較薬剤 1、2、3 および 4 は試験例 1 と同じ薬剤を使用した。結果は第 3 表のとおりである。

第 3 表

化合物番号	散布濃度 (ppm)	防除率	乗率指標
1	200	85	0
2	#	80	0
3	#	100	0
4	#	100	0
5	#	83	0
6	#	93	0
7	#	95	0
8	#	100	0
9	#	100	0
10	#	95	0
11	#	99	0
12	#	100	0
13	#	100	0

比較薬剤 1	#	70	5
# 2	#	71	5
# 3	#	70	5
# 4	480	80	0

無処理区	-	0	-
------	---	---	---

試験例3 水稻ごま葉枯病防除効果試験

苗室内で直径9cmの素地鉢で土耕栽培した水稻(品種 利日)の第4本葉期苗に所定濃度に希釈した薬液を散布し、散布1日後に稻ごま葉枯病菌の分生胞子発育度を観察検査した。播種5日後に第4葉の1葉あたりの病害数を調査し、次式により防除率を算出した。また試験例1と同様な方法により稀に対する薬害を調査した。結果は第4表のとおりである。

$$\text{防除率}(\%) = \left(1 - \frac{\text{散布区の病害数}}{\text{無散布区の病害数}} \right) \times 100$$

第4表

化合物番号	散布濃度(ppm)	防除率(%)	薬害程度
1	500	100	0
2	#	100	0
3	#	100	0
4	#	100	0
5	#	85	0

苗室内で直径9cmの素地鉢にて土耕栽培したキエクリ(品種 相模半白)の第1葉期苗に所定濃度に希釈した薬液を1.0mlを散布し、一夜放置後うどんこ病菌子発育度を観察検査した。播種10日後に病害面積歩合を調査し、下記式により防除率を算出した。結果は第5表のとおりである。

$$\text{防除率}(\%) = \left(1 - \frac{\text{散布区の病害面積歩合}}{\text{無散布区の病害面積歩合}} \right) \times 100$$

第5表

化合物番号	散布濃度(ppm)	防除率(%)	薬害程度
1	200	90	0
2	#	95	0
3	#	100	0
4	#	100	0
5	#	96	0
6	#	100	0
7	#	94	0
8	#	92	0

6	500	100	0
7	#	95	0
8	#	99	0
9	#	100	0
10	#	100	0
11	#	100	0
12	#	98	0
13	#	100	0

比較薬剤1	#	75	5
2	#	75	5
3	#	70	5
4	#	90	0

無処理区	-	0	-
------	---	---	---

比較薬剤1、2および3は試験例1と同じものを示し、比較薬剤4は化合物名2,4-ジクロロ-6-(0-タロロアニリノ)-1,3,5-トリアジンを含有する市販の殺菌剤(一般名トリアジン)である。

試験例4 キエクリうどんこ病防除効果試験

9	200	100	0
10	#	99	0
11	#	98	0
12	#	100	0
13	#	100	0

比較薬剤	#	100	0
------	---	-----	---

無処理区	-	0	-
------	---	---	---

比較薬剤は化学式 $\text{N}=\text{C}(\text{B}-\text{C}_6\text{H}_5-\text{n})-\text{C}(\text{B}-\text{CH}_2-\text{O}-\text{C}_6\text{H}_5-\text{t})$ で示される化合物を有効成分とする市販の殺菌剤(商品名シマート)である。

試験例5 きうり炭疽病防除効果試験

3号植木鉢に3本完熟した第一本葉展開期のきうり苗(品種 さつきみどり)を1鉢2株として、本発明の化合物が所定濃度になるとおりに希釈して調製した薬液をスプレーガンを用いて3.5mlを散布し、風乾後2.5℃の温室に入れ、きうり炭疽病菌(Colletotrichum lagenarium Ell et Halst.)の分生胞子発育液を均一に

噴霧して接着し、一夜温室に保つた後、人工気象室内に移して発病せしめた。発種5日後に第一本葉の発病程度を全く発病を認めないものと0、無処理区と同様に発病し、枯死したものと5、その中間に1、2、3、4の発病程度別指數を設けて判定し、下記の式によつて防除率を算出した。試験の結果は第6表のとおりである。

$$\text{防除率} = \left(\frac{\text{処理区の発病程度別指數の平均}}{\text{無処理区の発病程度別指數の平均}} \right) \times 100$$

9	4.00	10.0	0
10	#	9.8	0
11	#	8.5	0
12	#	9.6	0
13	#	10.0	0
比較薬剤	37.5	7.8	0
無処理区	-	0	-

比較薬剤はジチフノン（化学名2,3-ジシアノ-1,4-ジチア-1,4-ジヒドロアントラキノン）を使用した。

第6表

化合物番号	散布濃度(ppm)	防除率	率害程度
1	4.00	10.0	0
2	#	9.5	0
3	#	9.5	0
4	#	10.0	0
5	#	10.0	0
6	#	9.4	0
7	#	10.0	0
8	#	10.0	0

発病出願人 北興化学工業株式会社

同上 明治製薬株式会社

代 理 人 井端士山下白

第1頁の続き

②發明者 松本邦臣

町田市成瀬2712-80

同 渡辺哲郎

横浜市神奈川区松見町二丁目39

0番地の3

③出願人 明治製薬株式会社

東京都中央区京橋二丁目4番16

号